WELTORGANISATION FUR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶:

G21C 19/317

A1

(11) Internati nale Veröffentlichungsnummer:

WO 98/35356

(43) Internationales

Ver"ffentlichungsdatum:

13. August 1998 (13.08.98)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP98/00430

(22) Internationales Anmeldedatum: 27. Januar 1998 (27.01.98)

(30) Prioritätsdaten:

197 04 608.8

7. Februar 1997 (07.02.97)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): ECKARDT, Bernd [DE/DE]; Kastanienweg 14, D-63486 Bruchköbel (DE). HILL, Axel [DE/DE]; An der Schloßmühle 9, D-64589 Stockstadt (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, ID, JP, KR, RU, UA, US, VN, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen

(54) Title: DEVICE FOR RECOMBINING HYDROGEN IN A GAS MIXTURE

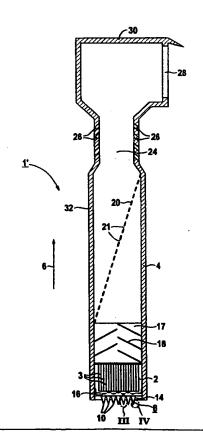
(54) Bezeichnung: VORRICHTUNG ZUR REKOMBINATION VON WASSERSTOFF IN EINEM GASGEMISCH

(57) Abstract

The invention relates to a device (1, 1') for recombining hydrogen in a gas mixture, for use in particular in a nuclear power station. During the operation of said device, unintentional ignition of the gas mixture is prevented in an especially reliable fashion. According to the invention, the device comprises a catalyst system (2), arranged in a housing (4) through which the gas mixture is able to circulate by free convection when the device is operational, to which is assigned a flame retention device (8). A sediment trap (14) is preferably integrated into the flame retention device (8) to reliably prevent hot catalyst particles that have become detached from the catalyst system (2) from exiting against the direction of flow of the gas mixture.

(57) Zusammenfassung

Eine Vorrichtung (1, 1') zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch, insbesondere für ein Kernkraftwerk, bei deren Betrieb eine ungewollte Zündung des Gasgemisches besonders sicher vermieden ist, umfaßt erfindungsgemäß eine Katalysatoranordnung (2), die in einem im Betriebsfall für das Gasgemisch in freier Konvektion durchströmbaren Gehäuse (4) angeordnet ist, und der eine Flammenrückhalteeinrichtung (8) zugeordnet ist. In die Flammenruckhalteeinrichtung (8) ist dabei vorzugsweise ein Sedimentfänger (14) integriert, so daß ein Austritt von sich aus der Katalysatoranordnung (2) ablösenden heißen Katalysatorpartikeln entgegen der Strömungsrichtung des Gasgemisches sicher vermieden ist.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	zw	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Beschreibung

Vorrichtung zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch

5

20

25

Die Erfindung bezieht sich auf eine Vorrichtung zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch, insbesondere für ein Kernkraftwerk.

In einem Kernkraftwerk könnte bei Stör- oder Unfallsituationen, so unwahrscheinlich diese auch sein mögen, beispielsweise aufgrund von Kernaufheizung eine Oxidation von Zirkonium
auftreten. In diesem Fall muß mit der Bildung und Freisetzung
von Wasserstoffgas und Kohlenmonoxid innerhalb des den Reaktorkern umschließenden Sicherheitsbehälters oder Containments
gerechnet werden. Dadurch können innerhalb des Containments
explosive Gasgemische entstehen.

Zur Verhinderung der Bildung derartiger explosiver Gasgemische im Containment eines Kernkraftwerks werden verschiedene Einrichtung oder Verfahren diskutiert. Hierzu gehören beispielsweise Einrichtungen wie katalytische Rekombinatoren, katalytisch und elektrisch betriebene Zündeinrichtungen oder die Kombination der beiden vorgenannten Einrichtungen sowie Verfahren einer permanenten oder nachträglichen Inertisierung des Containments.

Beim Einsatz eines katalytischen Rekombinators zur Beseitigung des Wasserstoffs aus der Atmosphäre des Containments soll insbesondere eine frühzeitige und flammenlose Rekombination des Wasserstoffs mit Sauerstoff erreicht werden. Dabei soll ein signifikanter Druckaufbau als Folge einer virulenten Wasserstoffverbrennung sicher vermieden sein. Eine dazu geeignete früh startende Rekombinationseinrichtung, die auch bei längerer Standzeit in der Containment-Atmosphäre nicht

2

wesentlich an Aktivität verliert und bei niedrigen Umgebungstemperaturen passiv startet, wird in der (nicht vorveröffentlichten) Deutschen Patentanmeldung 196 36 557.0 vorgeschlagen. Mit einer derartigen Rekombinationseinrichtung ist eine "sanfte" Rekombination des Wasserstoffs in einer z.B. dampfinertisierten Phase der Containment-Atmosphäre ohne eine Zündung möglich. Ein Katalysatorsystem zur Rekombination von Wasserstoff mit Sauerstoff ist auch aus der US-PS 5,167,908 bekannt.

10

15

5

Aus der EP 0 436 942 A1 ist ein Rekombinatorsystem mit einer Gehäuseschutzeinrichtung bekannt, die sich in Abhängigkeit von einer äußeren Temperatur selbsttätig öffnet. In einem Bereitschaftszustand des Rekombinationssystems ist die Gehäuseschutzeinrichtung hingegen geschlossen, so daß eine Verschmutzung der katalytisch aktiven Oberfläche des Rekombinators vermieden ist.

Bei einer aus der EP 0 416 140 A1 bekannten Rekombinatoreinrichtung hingegen sind Filtermedien vorgesehen, die Schadstoffe aus der Umgebungsatmosphäre, wie beispielsweise Aerosole, zurückhalten und somit den Katalysator der Rekombinatoreinrichtung gegen Verunreinigung schützen.

Aus der EP 0 388 955 A1 ist eine Rekombinatoreinrichtung bekannt, bei der zusätzlich eine Zündvorrichtung zur Auslösung einer kontrollierten Wasserstoffverbrennung vorgesehen ist.

Jedes bekannte Rekombinatorsystem ist für eine besonders hohe Rekombinatorleistung bei besonders geringen Komponentenabmessungen sowie für eine hohe Resistenz gegenüber Verunreinigung ausgelegt. Für den Einsatz einer Vorrichtung zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch in einem Kernkraftwerk ist darüber hinaus aber auch sicherzustellen, daß keine die Sicherheit des Kernkraftwerks negativ beeinflussenden Ef-

3

fekte auftreten können. Es ist zu berücksichtigen, daß eine zur Rekombination des Wasserstoffs eingesetzte Katalysatoranordnung sich in Folge der Rekombination üblicherweise erwärmt und aufgrund ihrer erhöhten Temperatur zur Zündung des Gasgemischs innerhalb der Containment-Atmosphäre des Kernkraftwerks in ungewollter Weise beitragen könnte.

5

35

BNSDOCID: WO 9835358A1 I S

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, eine Vorrichtung zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch,

insbesondere für die Containment-Atmosphäre eines Kernkraftwerks, anzugeben, bei deren Betrieb eine ungewollte Zündung
des Gasgemischs besonders sicher vermieden ist.

Diese Aufgabe wird für eine Vorrichtung der obengenannten Art erfindungsgemäß gelöst, indem einer zugehörigen Katalysatoranordnung, die in einem im Betriebsfall für das Gasgemisch in freier Konvektion durchströmbaren Gehäuse angeordnet ist, eine Flammenrückhalteeinrichtung zugeordnet ist.

Unter "freier Konvektion" ist hierbei insbesondere zur verstehen, daß eine aus der Rekombination des Wasserstoffs in der Umgebung der Katalysatoranordnung resultierende lokale Temperaturerhöhung des Gasgemisches in einem Auftrieb resultiert, der den Druckverlust in der Rekombinationsvorrichtung derart überkompensiert, daß die Strömung des Gasgemisches durch die Rekombinationsvorrichtung ohne äußere Antriebsmittel gewährleistet ist. Das Gehäuse ist dabei in der Art eines annähernd senkrecht angeordneten Schachtes ausgebildet, so daß im Betriebsfall eine Kaminwirkung zur Unterstützung der Strömung des Gasgemisches eintritt.

Die Erfindung geht von der Erkenntnis aus, daß eine ungewollte Zündung des Gasgemisches in der Umgebung der Rekombinationsvorrichtung durch eine aus diese austretende, bei der Rekombination erzeugte Flamme ausgelöst werden könnte. Um

4

dies sicher zu vermeiden, sollte der vom Gehäuse umschlossene Innenraum der Rekombinationsvorrichtung von ihrem Außenraum explosionstechnisch entkoppelt sein. Dazu ist eine Flammen-rückhalteeinrichtung vorgesehen. Die Flammenrückhalteeinrichtung sollte dabei derart angeordnet sein, daß insbesondere eine Flammenausbreitung entgegen der Strömungsrichtung des Gasgemisches sicher unterbunden ist.

Die Flammenrückhalteeinrichtung kann als das Gehäuse ganz oder teilweise umgebendes Lochblech oder Gitter ausgebildet sein. Vorzugsweise ist die Flammenrückhalteeinrichtung der Katalysatoranordnung vorgeschaltet.

Um eine ungewollte Zündung des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden Gasgemisches besonders zuverlässig zu vermeiden, ist der Katalysatoranordnung vorteilhafterweise ein Sedimentfänger vorgeschaltet.

Wie sich nämlich in überraschender Weise herausstellte, kön-20 nen auch sogenannte "vagabundierende" heiße Katalysatorpartikel zu einer Zündung des die Rekombinatorvorrichtung umgebenden Gasgemisches beitragen. Beim Betrieb oder auch im Stillstand einer Rekombinationsvorrichtung kann es zur Ablösung von Partikeln aus der Katalysatoranordnung kommen. Diese ab-25 gelösten Katalysatorpartikel können aufgrund der bei der Rekombination des Wasserstoffs freigesetzten Wärme eine hohe Temperatur aufweisen und somit bei ihrem Eintritt in ein zündfähiges Gasgemisch, beispielsweise in der Umgebung der Rekombinationsvorrichtung, eine Zündung verursachen. Um eine 30 derartige Zündung durch aus der Rekombinationsvorrichtung ausgetragene vagabundierende Katalysatorpartikel sicher zu vermeiden, ist der Sedimentfänger vorgesehen. Der Sedimentfänger ist dabei zweckmäßigerweise in die Flammenrückhalteeinrichtung integriert.

5

10

5

Für eine besonders zuverlässige Vermeidung einer Zündung des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden Gasgemisches durch vagabundierende heiße Katalysatorpartikel ist der Sedimentfänger vorteilhafterweise durch das in das Gehäuse einströmende Gasgemisch kühlbar. Somit ist eine sofortige zuverlässige Abkühlung eines auf den Sedimentfänger auftreffenden glühenden Katalysatorpartikels auf besonders einfache Weise sichergestellt.

5

DMCDOCID: JMO 0935356A+ L -

Zweckmäßigerweise weist das Gehäuse der Rekombinationsvorrichtung oberhalb einer Ausströmöffnung für das Gasgemisch ein Gehäusedach auf. Ein für die Durchströmung des Gasgemisches in freier Konvektion besonders geeignetes, schachtartig ausgebildetes Gehäuse ist somit auch in Kombination mit einem oberhalb angeordneten Spraysystem einsetzbar, ohne daß eine Direktbeaufschlagung der Katalysatoranordnung mit Tropfen eintreten könnte. Eine aus der Direktbeaufschlagung der Katalysatoranordnung mit Tropfen resultierende Auswaschung von Katalysatorpartikeln ist somit allenfalls in geringem Maße möglich.

Die Flammenrückhalteeinrichtung weist vorteilhafterweise eine Anzahl von zur Einströmung des Gasgemisches vorgesehenen Einströmöffnungen mit einer mittleren Größe von mehr als 0,1 mm, vorzugsweise von mehr als 0,2 mm, auf. Die mittlere Größe der 25 Einströmöffnungen beträgt dabei zweckmäßigerweise höchstens 3 mm, vorzugsweise höchstens 2 mm. Durch eine derartige Dimensionierung der Eintrittsöffnungen ist die Funktionsweise der Flammenrückhalteeinrichtung sichergestellt, wobei Partikel kleinerer Größe, wie beispielsweise Aerosole, frei pene-30 trieren können. Eine Verblockungsgefahr durch Kleinpartikel, wie beispielsweise Aerosole, ist somit sicher vermieden. Der für das Strömungsverhalten des Gasgemisches durch die Rekombinationsvorrichtung relevante Druckverlust bleibt somit auch 35 nach längerem Betrieb besonders gering. Zudem ist bei einer

6

derartigen Dimensionierung in Kombination mit einer geeignet gewählten Anströmfläche die Auslegung der Rekombinationsvorrichtung für eine besonders günstige Strömungsgeschwindigkeit des einströmenden Gasgemisches im Hinblick auf die Rekombinationsrate des Wasserstoffs möglich.

5

10

15

RNSDOCID: -WO 993535641 I >

Um eine Zündung des Gasgemisches außerhalb der Rekombinationsvorrichtung besonders zuverlässig zu unterbinden, ist ein von der Katalysatoranordnung und von der Flammenrückhalteeinrichtung begrenztes Deflagrationsvolumen in der Relation zum Volumen des Rekombinatorschachts oder schachtartigem Gehäuses vorzugsweise kleiner als etwa 20% des Volumens des Rekombinatorschachts. Dabei begrenzt das Deflagrationsvolumen eine Flamme vorteilhafterweise auf eine Flammenlänge von höchstens 0,3 m, oder ein mittlerer Abstand der Flammenrückhalteeinrichtung zu der Katalysatoranordnung höchstens beträgt 0,3 m.

Zur Vermeidung eines Austrages von Grobpartikeln mit dem auf-20 grund der Rekombinationsreaktion aufgeheizten Gasgemisch aus der Rekombinationsvorrichtung ist der Katalysatoranordnung vorzugsweise ein Grobpartikelfänger nachgeschaltet. Der Grobpartikelfänger kann dabei derart ausgelegt sein, daß einerseits der Austrag aus der Katalysatoranordnung ausgelöster 25 vagabundierender Katalysatorpartikel aus der Rekombinationsvorrichtung wirksam unterbunden ist, und daß andererseits im Bereich des Grobpartikelfängers eine Mischwirkung im durchströmenden Gasgemisch zum Zweck einer Temperaturhomogenisierung auftritt. Der Grobpartikelfänger ist dabei derart dimen-30 sioniert, daß Partikel kleiner Partikelgröße, wie beispielsweise Atmosphärenaerosole, frei penetrieren können. Eine Filterung von Atmosphärenaerosolen ist dabei nicht erforderlich, insbesondere weil durch die Thermophorese oder temperaturinduzierte Abstoßung an der Katalysatoranordnung eine Abla-35 gerung der Aerosole weitgehend vermieden ist. Eine Ver-

7

blockungsgefahr durch die Aerosole ist somit sicher vermieden, so daß ein die freie Konvektion in der Rekombinationsvorrichtung hemmender Druckverlust auch bei längerem Betrieb der Rekombinationsvorrichtung gering bleibt. Der Durchsatz des Gasgemisches durch die Rekombinationsvorrichtung ist somit auch bei längerem Betrieb nicht beeinträchtigt. Der Grobpartikelfänger weist dazu vorteilhafterweise eine Anzahl von Durchtrittsöffnungen mit einer mittleren Spaltbreite von mindestens 0,1 mm, vorzugsweise von mindestens 0,2 mm und von höchstens 1 mm, auf. Der Grobpartikelfänger kann hierbei als einlagiges Siebblech oder auch als mehrlagige Sieb- oder Faseranordnung oder als eine Kombination von beiden ausgebildet sein.

Zur Begrenzung der Oberflächentemperaturen der Rekombina-15 tionsvorrichtung auf einen Bereich deutlich unterhalb der Zündtemperatur des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden Gasgemisches weist das Gehäuse vorteilhafterweise einen Isoliermantel auf. Dabei kann in der Art einer Doppelmantelausführung ein Luftspalt oder auch ein temperatur- und strahlen-20 beständiger Isolierstoff vorgesehen sein. Zur Verringerung einer Wärmeübertragung durch Strahlung kann die Innenoberfläche des Gehäuses zudem verspiegelt sein. Die Innenoberfläche kann dabei derart geschliffen sein, daß ein dreidimensionaler Spiegeleffekt entsteht, der insbesondere in einem Temperatur-25 bereich von mehr als 500°C den relevanten Wärmetransport durch Strahlung gering hält.

Zur Kühlung des aus der Rekombinationsvorrichtung austretenden Gasgemisches auf eine Temperatur deutlich unterhalb der
Zündtemperatur des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden
Gasgemisches ist der Katalysatoranordnung zweckmäßigerweise
eine Beimischstrecke zur Zumischung von Umgebungsatmosphäre
zu dem aus der Katalysatoranordnung austretenden Gasgemisch
nachgeschaltet. Die Beimischstrecke ist dabei zweckmäßiger-

5

8

weise strömungsseitig hinter dem Grobpartikelfänger angeordnet. Zur Beimischung ist dabei vorzugsweise im Gehäuse eine Anzahl von Spaltöffnungen zur Zuführung von Umgebungsatmosphäre zum innerhalb des Gehäuses strömenden Gasgemisch vorgesehen.

Für eine besonders zuverlässige Vermeidung einer ungewollten Zündung des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden Gasgemisches ist die Rekombinationsvorrichtung zweckmäßigerweise 10 derart ausgelegt, daß das aus der Katalysatoranordnung ausströmende, durch die Rekombination des Wasserstoffs aufgeheizte Gasgemisch eine Temperatur unterhalb der Zündtemperatur des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden Gasgemisches aufweist. Dazu ist der Katalysatoranordnung vorteilhafter-15 weise ein statischer Mischer nachgeschaltet, der eine Homogenisierung oder Vergleichmäßigung der Temperatur des aus der Katalysatoranordnung ausströmenden Gasgemisches bewirkt. Lokal besonders stark aufgeheizte Teile des Gasgemisches werden dabei mit lokal besonders schwach aufgeheizten Teilen des 20 Gasgemisches vermischt, so daß hohe Maximaltemperaturen vermieden sind.

Für eine besonders effektive Rekombination des im Gasgemisch geführten Wasserstoffs weist die Katalysatoranordnung zweckmäßigerweise Platin und/oder Palladium als katalytisch aktives Material auf. Zweckmäßigerweise umfaßt die Katalysatoranordnung eine Anzahl annähernd plattenförmiger Katalysatorkörper, wobei jeweils zwei benachbarte Katalysatorkörper in einem mittleren Abstand zueinander von mindestens 0,8 cm und von höchstens 3 cm angeordnet sind. Für eine hohe Rekombinationsrate bei geringem Volumen ist dabei vorteilhafterweise jeder Katalysatorkörper beidseitig mit Katalysatormaterial unter Bildung von Reaktionsflächen beschichtet, wobei das Gasgemisch sowohl über die frontseitige als auch über die

25

30

9

rückseitige Rekationsfläche jedes Katalysatorkörpers leitbar ist.

Die Katalysatorkörper sind zweckmäßigerweise in einer gemeinsamen Halterung gehaltert. Die Rekombinationsvorrichtung ist somit mit besonders geringem Montage- und Installationsaufwand herstellbar. Die Halterung weist dabei vorteilhafterweise eine gute Wärmeleitfähigkeit auf, so daß in besonders einfacher Weise eine Vergleichmäßigung der Temperatur im Bereich der Katalysatoranordnung gewährleistet ist.

Um die Temperatur des aus der Katalysatoranordnung ausströmenden Gasgemisches besonders zuverlässig unterhalb der Zündtemperatur des die Rekombinationsvorrichtung umgebenden Gasgemisches zu halten, ist die Katalysatoranordnung vorteilhafterweise für eine Oxidation lediglich eines Anteils des im
Gasgemisch geführten Wasserstoffs, vorzugsweise für eine Oxidation eines Anteils des im Gasgemisch geführten Wasserstoffs
von weniger als 70%, vorzugsweise weniger als 50%, ausgelegt.

20

25

30

35

10

15

Eine besonders zuverlässige Konvektionsströmung innerhalb der Rekombinationsvorrichtung ist erreichbar, indem das Gehäuse in Strömungsrichtung des Gasgemisches vorteilhafterweise eine Länge von mindestens 0,4 m, vorzugsweise von mindestens 1 m und von höchstens 2 m, aufweist.

Die mit der Erfindung erzielten Vorteile bestehen insbesondere darin, daß durch die der Katalysatoranordnung vorgeschaltete Flammenrückhalteeinrichtung die Ausbreitung einer in Folge der bei der Rekombination von Wasserstoff freigesetzten Wärme auftretenden Flamme in einen Raumbereich außerhalb der Rekombinationsvorrichtung sicher vermieden ist. Durch eine geeignete Dimensionierung der Flammenrückhalteeinrichtung ist dabei die Auslegung der Rekombinationsvorrichtung für einen besonders geringen Druckverlust möglich, so

10

daß die Rekombinationsvorrichtung in freier Konvektion und somit mit einfachen Mitteln betreibbar ist. Durch den der Katalysatoranordnung zweckmäßigerweise vorgeschalteten, vorteilhafterweise in die Flammenrückhalteeinrichtung integrierten Sedimentfänger ist zudem ein Austrag sich ablösender vagabundierender heißer Katalysatorpartikel in den Raumbereich außerhalb der Rekombinationsvorrichtung sicher vermieden. Ein flammenloser Betrieb der Rekombinationsvorrichtung in zündfähiger Atmosphäre ist somit unter Vermeidung ungewollter Zündungen im Raumbereich außerhalb der Rekombinationsvorrichtung möglich.

Ausführungsbeispiele der Erfindung werden anhand einer Zeichnung näher erläutert. Darin zeigen:

15

- Figur 1 eine Vorrichtung zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch,
- Figur 2 eine alternative Vorrichtung zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch,
 - Figur 3 einen Ausschnitt III aus Figur 2, und
 - Figur 4 einen Ausschnitt IV aus Figur 2.

25

Gleiche Teile sind in allen Figuren mit den gleichen Bezugszeichen versehen.

Die Vorrichtung 1 gemäß Figur 1 und die Vorrichtung 1' gemäß

Figur 2 sind jeweils zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch, nämlich in der Containment-Atmosphäre eines nicht näher dargestellten Kernkraftwerks bei einem Störfall, vorgesehen. Die Vorrichtung 1, 1' umfaßt dazu jeweils eine Katalysatoranordnung 2, bei der in nicht näher dargestellter

Weise für die Rekombination von Wasserstoff geeignetes kata-

11

lytisch aktives Material auf einer Trägeranordnung angebracht ist. Als katalytisch aktives Material kann dabei insbesondere eine Mischung aus Edelmetallen oder auch eine Anordnung von Edelmetallfolien vorgesehen sein. Als Edelmetall sind dabei insbesondere Platin und/oder Palladium vorgesehen.

Die Katalysatoranordnung 2 umfaßt eine Anzahl annähernd plattenförmiger, annähernd parallel angeordneter Katalysatorkörper 3, die einem Abstand von mindestens 0,8 cm und höchstens 3 cm zueinander angeordnet sind. Die Katalysatorkörper 3 können dabei als massive Platten oder auch als Schüttung in einem plattenförmigen Tragewerk ausgeführt sein.

Jeder Katalysatorkörper 3 ist beidseitig mit Katalysatormaterial unter Bildung von Reaktionsflächen beschichtet, wobei 15 das Gasgemisch sowohl über die frontseitige als auch über die rückseitige Reaktionsfläche jedes Katalysatorkörpers 3 leitbar ist. Für eine besonders einfache Montage sind die Katalysatorkörper 3 in einer als Einschub aufgebildeten gemeinsamen 20 Halterung mit hohem Wärmeleitungsvermögen gehaltert.

Die Katalysatoranordnung 2 ist in einem Gehäuse 4 angeordnet. Das Gehäuse 4 ist dabei derart ausgebildet, daß die Vorrichtung 1, 1' im Betriebsfall für das Gasgemisch in freier Konvektion durchströmbar ist. Dazu bildet das Gehäuse 4 entlang einer im wesentlichen vertikalen, durch den Pfeil 6 angedeuteten Vorzugsrichtung einen Schacht. Der in Folge der Wärmeentwicklung bei der Rekombination des Gasgemisches im Bereich der Katalysatoranordnung 2 verursachte Auftrieb bewirkt im Betriebsfall der Vorrichtung 1, 1' eine Überkompensation des 30 Druckabfalls für das Gasgemisch, so daß in Folge einer Kaminwirkung des schachtartig ausgestalten Gehäuses 4 eine Durchströmung des Gasgemisches durch die Vorrichtung 1, 1' ohne äußere Hilfs- oder Antriebsmittel einsetzt. Der schachtartig 35 ausgebildete Teil des Gehäuses weist dabei eine Kaminhöhe

5

10

12

zwischen 0,5 m und 2,5 m zur Kompensation der verursachten Druckverluste auf. Für ein besonders günstiges Konvektions-verhalten weist das Gehäuse 4 zudem zweckmäßigerweise ein Höhen-zu-Tiefen-Verhältnis zwischen 0,3 und 10 auf.

5

10

15

20

25

Die Vorrichtung 1, 1' ist derart ausgestaltet, daß auch bei den in Folge der Wärmefreisetzung bei der Rekombination von Wasserstoff im Bereich der Katalysatoranordnung 2 auftretenden hohen Temperaturen eine Zündung zündfähigen Gasgemisches im Bereich außerhalb der Vorrichtung 1, 1' sicher vermieden ist. Dazu ist der Katalysatoranordnung 2 eine Flammenrückhalteeinrichtung 8 zugeordnet. Im Ausführungsbeispiel gemäß Figur 1 ist die Flammenrückhalteeinrichtung 8 als das Gehäuse 4 vollständig umschließendes Drahtgitter ausgebildet. Alternativ kann auch ein Lochblech vorgesehen sein.

Im Ausführungsbeispiel gemäß Figur 2 ist die Flammenrückhalteeinrichtung 8 der Katalysatoranordnung 2 vorgeschaltet. Die Flammenrückhalteeinrichtung 8 ist dabei derart strömungsseitig vor der Katalysatoranordnung 2 angeordnet, daß ihr mittlerer Abstand zur Katalysatoranordnung 2 weniger als 0,3 m beträgt. Das von der Katalysatoranordnung 2 und der Flammenrückhalteeinrichtung 8 begrenzte Volumen begrenzt eine dort entstehende Flamme somit auf eine Flammenlänge von weniger als 0,3 m.

Die Flammenrückhalteeinrichtung 8 umfaßt im Ausführungsbeispiel gemäß Figur 2 eine Anzahl von Flammenfiltern 10, von
denen in Figur 3 einer gezeigt ist. Jeder Flammenfilter 10

30 ist im Ausführungsbeispiel aus einem perforierten metallischen Grundkörper 11 aufgebaut, wobei die Perforierung - wie
in Figur 4 im Ausschnitt dargestellt - eine Anzahl von Einströmöffnungen 12 für das Gasgemisch freigibt. Der Grundkörper 11 ist dabei von einer Schicht 13 aus Fasergewebe, insbesondere aus Metallfasergewebe, bedeckt. Ein derartig ausge-

13

bildeter Flammenfilter 10 trägt zusätzlich auch zu einer Homogenisierung des ihn durchströmenden Gasgemisches bei.

Die Perforierung des metallischen Grundkörpers 11 jedes Flammenfilters 10 kann beispielsweise rund, geschlitzt oder quadratförmig ausgeführt sein. Alternativ sind auch andere Ausführungen der Perforierung möglich. Die durch alle Eintrittsöffnungen 12 definierte summierte relative freie Fläche aller Flammenfilter 10 ist mindestens so groß, vorteilhafterweise etwa 1- bis 3-mal so groß, wie der freie Eintrittsquerschnitt der Katalysatoranordnung 2.

Für eine besonders große Oberfläche jedes Flammenfilters 10 ist der jeweilige Grundkörper 11 mit verschiedenen Faltungen und/oder Abkantungen versehen, wobei sich ein annähernd sternförmiger Querschnitt ergibt. Die Spaltbreite der durch die Perforierung der Grundkörper 11 der Flammenfilter 10 gegebenen Eintrittsöffnungen 12 ist weiterhin an die im Auslegungsfall erwartete Wasserstoff-Konzentration angepaßt. Für eine explosionstechnische Entkopplung des Inneren der Vorrichtung 1' von ihrer Umgebung bei einer Wasserstoff-Konzentration von bis zu 10 Vol% ist beispielsweise eine Spaltweite von maximal 2 mm vorgesehen. Bei einer Wasserstoff-Konzentration im Auslegungsfall von mehr als 10 Vol% ist hingegen eine Spaltweite von weniger als 1 mm vorgesehen. Die Spaltweite der Perforierung der metallischen Grundkörper 11 der Flammenfilter 10 ist dabei zudem derart dimensioniert, daß eine Abscheidung von Kolloiden oder Aerosolen an den Flammenfiltern 10 weitgehend vermieden ist. Eine Verstopfung der Vorrichtung 1' bei ihrem Betrieb ist somit sicher vermieden.

Als weiteres Auslegungskriterium bei der Dimensionierung der Spaltweite der in den metallischen Grundkörpern 11 der Flammenfilter 10 vorgesehenen Eintrittsöffnungen 12 ist berücksichtigt, daß der Druckaufbau innerhalb des Gehäuses 4 der

5

10

15

20

25

30

14

Vorrichtung 1' im Falle einer Zündung des dort vorhandenen Gasgemisches kleiner als etwa 100 hPa bleiben soll, so daß eine Gefährdung der Vorrichtung 1' sicher vermieden ist. Dazu ist die Spaltweite der Eintrittsöffnungen 12 in den metallischen Grundkörpern 11 der Flammenfilter 10 derart bemessen, daß ein ausreichender Entlastungsquerschnitt für den Fall einer derartigen Zündung vorhanden ist.

In die Flammenrückhalteeinrichtung 8 ist im Ausführungsbeispiel gemäß Figur 2 ein Sedimentfänger 14 integriert. Dazu
ist jeder Flammenfilter 10 derart ausgebildet, daß Partikel,
die - wie in Figur 3 schematisch dargestellt - direkt oder
über einen Flüssigkeitstropfen in den im Längsschnitt V-förmig ausgebildeten Flammenfilter 10 gelangen, sich in dessen
Bodenbereich ablagern. Dabei möglicherweise abgeschiedene
Flüssigkeit gelangt über Ausströmöffnungen 15 in ein nicht
näher dargestelltes Ablaufsystem.

Der Sedimentfänger 14 umfaßt weiterhin eine Anzahl von Fän-20 gerblechen 16, von denen jeweils eines über dem Einströmkanal jedes Flammenfilters 10 angeordnet ist. Alternativ oder zusätzlich kann der Sedimentfänger 14 auch ein in Strömungsrichtung des Gasgemisches gesehen vor der Katalysatoranordnung 2 angeordnetes Drahtgeflecht umfassen. Bei der Dimensio-25 nierung des Sedimentfängers 14 hinsichtlich der Größe der aufzufangenden Partikel ist die Erkenntnis berücksichtigt, daß aus physikalischen Gründen vornehmlich Katalysatorpartikel mit einer Korngröße von mehr als etwa 100 µm zu einer Zündung des Gasgemisches beitragen. Ein Austritt sich aus der 30 Katalysatoranordnung 2 ablösender vagabundierender heißer Katalysatorpartikel von mehr als dieser Korngröße aus dem Gehäuse 4 entgegen der Strömungsrichtung des Gasgemisches ist durch den Sedimentfänger 14 sicher vermieden. Der Sedimentfänger 14 sowie die Flammenrückhalteeinrichtung 8 sind durch 35 das in das Gehäuse 4 einströmende Gasgemisch kühlbar.

15

Die Katalysatoranordnung 2 ist derart dimensioniert, daß im Auslegungsfall lediglich ein Anteil des Wasserstoffs der im in die Vorrichtung 1, 1' einströmenden Gasgemisch geführt wird, von weniger als 50% oxidiert wird. Die Temperaturerhöhung im Gasgemisch, die aus der durch die Oxidation freigesetzten Wärmemenge resultiert, ist somit nur begrenzt. Die Temperatur des aus der Katalysatoranordnung 2 austretenden Gasgemisches ist somit deutlich unterhalb der Zündtemperatur der Atmosphäre in der Umgebung der Vorrichtung 1, 1' gehalten.

Für eine weitere Begrenzung der im Gasgemisch auftretenden Maximaltemperatur ist - wie in Figur 2 dargestellt - im Gehäuse 4 in Strömungsrichtung des Gasgemisches nach der Katalysatoranordnung 2 ein statischer Mischer 17 angeordnet. Der statische Mischer 17, der beispielsweise eine Anzahl von Mischplatten 18 umfaßt, dient dabei zur Durchmischung oder Verwirbelung des durchströmenden Gasgemisches. Durch eine derartige Durchmischung oder Verwirbelung wird eine Homogenisierung der Temperatur des Gasgemisches über den Querschnitt innerhalb des Gehäuses 4 erreicht. Aufgrund ihrer räumlichen Nähe zu den Katalysatorkörpern stärker aufgeheizte Zonen innerhalb des Gasgemisches werden dabei mit aufgrund ihrer vergleichsweise größeren räumlichen Entfernung zu den Katalysatorkörpern 3 vergleichsweise kälteren Zonen des Gasgemisches durchmischt. Dadurch wird eine effektive Temperaturherabsetzung der am stärksten aufgeheizten Bereiche innerhalb des Gasgemisches erreicht, so daß vorgebbare Temperaturgrenzwerte

30

35

25

10

15

20

Innerhalb des Gehäuses 4 ist der Katalysatoranordnung 2 ein Grobpartikelfänger 20 nachgeschaltet. Der Grobpartikelfänger 20, der im Ausführungsbeispiel gemäß Figur 2 dem statischen Mischer 17 nachgeschaltet ist, ist dabei im Ausführungsbeispiel aus einem Geflecht dünner Drähte aufgebaut. Das Ge-

für das Gasgemisch sicher unterschritten sind.

16

flecht bildet Durchtrittsöffnungen 21, wobei die Maschenweite des Drahtgewebes unter Berücksichtigung des Druckverlustes der Vorrichtung 1, 1' und der erforderlichen Abscheideleistung kleiner als 800 µm gewählt ist. Als weiteres Auslegungskriterium bei der Dimensionierung der Maschenweite ist zudem berücksichtigt, daß am Grobpartikelfänger 20 keine Abscheidung von Kolloiden oder Aerosolen erfolgen soll. Der Grobpartikelfänger 20 ist vielmehr derart dimensioniert, daß Aerosole oder Kolloide quantitativ und ohne nennenswerte Abscheideverluste penetrieren können. Eine Verblockungsgefahr aufgrund sich ablagernder Aerosole oder Kolloide ist somit sicher vermieden. Der Durchsatz durch die Vorrichtung 1, 1' ist somit auch bei längerem Betrieb nicht nennenswert beeinflußt. Die Maschenweite des Grobpartikelfängers 20 beträgt dabei mehr als 0,1 mm, insbesondere 0,2 mm bis 0,8 mm. Alternativ kann der Grobpartikelfänger 20 auch eine Hintereinanderschaltung mehrerer grobmaschiger Drahtgeflechte umfassen. In diesem Fall kann die Maschenweite jedes Drahtgeflechts auch größer als 1 mm gewählt sein.

20

25

10

15

Dem Grobpartikelfänger 20 und somit auch der Katalysatoranordnung 2 ist eine Beimischstrecke 24 zur Zumischung von Umgebungsatmosphäre zu dem aus der Katalysatoranordnung 2 austretenden Gasgemisch nachgeschaltet. Im Bereich der Beimischstrecke 24 weist das Gehäuse 4 dazu eine Anzahl von Spaltöffnungen 26 auf. Durch Zumischung von Umgebungsatmosphäre zu
dem aus der Katalysatoranordnung 2 austretenden Gasgemisch
kann dessen Temperatur zuverlässig auf einen Wert unterhalb
der Zündtemperatur der Umgebungsatmosphäre abgesenkt werden.

30

35

Im Endbereich des Gehäuses 4 der Vorrichtung 1, 1' ist eine Ausströmöffnung 28 für das Gasgemisch vorgesehen. Die Ausströmöffnung 28 ist dabei seitlich im Gehäuse 4 angeordnet, so daß bei annähernd vertikaler Anordnung der Vorrichtung 1, 1' eine Ausströmung des Gasgemisches in annähernd horizonta-

17

ler Richtung erfolgt. Oberhalb der Ausströmöffnung 28 ist das Gehäuse 4 mit einem Gehäusedach 30 versehen. Das Gehäusedach 30 dient dabei als tropfenabweisende Begrenzung für die Vorrichtung 1, 1', so daß auch beim Betrieb eines Spraysystems oberhalb der Vorrichtung 1, 1' ein Direkteintrag von Flüssigkeitstropfen in die Vorrichtung 1, 1' vermieden ist. Eine Auswaschung von Katalysatorpartikeln aus der Katalysatoranordnung 2 ist somit auch beim Einsatz eines derartigen Spraysystems sicher vermieden.

10

15

20

25

Das Gehäuse 4 weist im Ausführungsbeispiel gemäß Figur 2 einen Isoliermantel 32 auf. Im Ausführungsbeispiel ist der Isoliermantel 32 in der Art einer Doppelmantelausführung als Luftspalt ausgebildet. Alternativ kann auch ein zwischen zwei Mantelschichten angeordneter temperatur- und strahlenbeständiger Isolierstoff vorgesehen sein. Zur Verringerung einer Wärmeübertragung durch Strahlung vom Innenbereich des Gehäuses 4 auf dessen Außenbereich ist die Oberfläche der Innenseite des Isoliermantels 32 derart geschliffen, daß ein Spiegeleffekt entsteht. Ein Austritt von Strahlung durch den Isoliermantel 32 ist somit sicher vermieden. Durch diese Ausgestaltung des Isoliermantels 32 ist insbesondere der in einem Temperaturbereich von mehr als 500°C relevante Wärmetransport durch Strahlung in einem hohen Maße unterbunden. Die mit einem derartigen Isoliermantel 32 versehene Vorrichtung 1' weist beim Betrieb im Auslegungsfall eine Außentemperatur ihres Gehäuses von deutlich weniger als 500°C auf. Eine Zündung des das Gehäuse 4 umgebenden Gasgemisches aufgrund einer hohen Gehäuseaußentemperatur ist somit sicher vermieden.

RNSDOCID- ZWO QR35356A1 Ls

18

Patentansprüche

5

- 1. Vorrichtung (1, 1') zur Rekombination von Wasserstoff in einem Gasgemisch, bei der einer Katalysatoranordnung (2), die in einem im Betriebsfall für das Gasgemisch in freier Konvektion durchströmbaren Gehäuse (4) angeordnet ist, eine Flammenrückhalteeinrichtung (8) zugeordnet ist.
- Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 1, bei der die Flammen rückhalteeinrichtung (8) der Katalysatoranordnung (2) vorgeschaltet ist.
- 3. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 1 oder 2, bei der der Katalysatoranordnung (2) ein Sedimentfänger (14) vorgeschaltet ist.
 - 4. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 3, bei der der Sedimentfänger (14) in die Flammenrückhalteeinrichtung (8) integriert ist.
 - 5. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 3 oder 4, deren Sedimentfänger (14) durch das in das Gehäuse (4) einströmende Gasgemisch kühlbar ist.
- 6. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 5, deren Gehäuse (4) ein oberhalb einer Ausströmöffnung (28) für das Gasgemisch angeordnetes Gehäusedach (30) aufweist.
- 7. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 6, de-30 ren Flammenrückhalteeinrichtung (8) eine Anzahl von zur Einströmung des Gasgemisches vorgesehenen Einströmöffnungen (12) mit einer mittleren Größe von mehr als 0,1 mm aufweist.
- 8. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 7, bei der die Einström-35 öffnungen (12) jeweils eine mittlere Größe von mindestens

19

- 0,2 mm und von höchstens 3 mm, vorzugsweise von höchstens 2 mm, aufweisen.
- 9. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 8, bei der ein von der Katalysatoranordnung (2) und von der Flammenrückhalteeinrichtung (8) begrenztes Volumen eine Flamme auf eine Flammenlänge von höchstens 0,3 m begrenzt.
- 10. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 9, bei der ein mittlerer Abstand der Flammenrückhalteeinrichtung (8) zu der Katalysatoranordnung (2) höchstens 0,3 m beträgt.
- 11. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 10,bei der der Katalysatoranordnung (2) ein Grobpartikelfänger(20) nachgeschaltet ist.
 - 12. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 11, deren Grobpartikelfänger (20) eine Anzahl von Durchtrittsöffnungen (21) mit einer mittleren Spaltbreite von mindestens 0,1 mm, vorzugsweise von mindestens 0,2 mm und von höchstens 1 mm, aufweist.
 - 13. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 12, bei der das Gehäuse (4) einen Isoliermantel (32) aufweist.
- 25 14. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 13, bei der der Katalysatoranordnung (2) eine Beimischstrecke (24) zur Zumischung von Umgebungsatmosphäre zu dem aus der Katalysatoranordnung (2) austretenden Gasgemisch nachgeschaltet ist.

15. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 14, bei der der Katalysatoranordnung (2) ein statischer Mischer (17) nachgeschaltet ist.

30

- 16. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 15, bei der die Katalysatoranordnung (2) als katalytisch aktives Material Platin und/oder Palladium aufweist.
- 5 17. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 16, bei der die Katalysatoranordnung (2) eine Anzahl annähernd plattenförmiger Katalysatorkörper (3) umfaßt, wobei jeweils zwei benachbarte Katalysatorkörper (3) in einem mittleren Abstand zueinander von mindestens 0,8 cm und von höchstens 3 cm angeordnet sind.
- 18. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 17, bei der jeder Katalysatorkörper (3) beidseitig mit Katalysatormaterial unter Bildung von Reaktionsflächen beschichtet ist, wobei das Gasgemisch sowohl über die frontseitige als auch über die rückseitige Reaktionsfläche jedes Katalysatorkörpers (3) leitbar ist.
- 19. Vorrichtung (1, 1') nach Anspruch 17 oder 18, bei der die 20 Katalysatorkörper (3) in einer gemeinsamen Halterung mit gutem Wärmeleitungsvermögen, insbesondere in einem Einschub, gehaltert sind.
- 20. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 19,
 25 deren Katalysatoranordnung (2) für eine Oxidation lediglich
 eines Anteils des im Gasgemisch geführten Wasserstoffs, vorzugsweise für eine Oxydation eines Anteils des im Gasgemisch
 geführten Wasserstoffs von weniger als 50%, ausgelegt ist.
- 21. Vorrichtung (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 20, deren Gehäuse in Strömungsrichtung des Gasgemisches eine Länge von mindestens 0,4m, vorzugsweise von mindestens 1m und von höchstens 2m, aufweist.

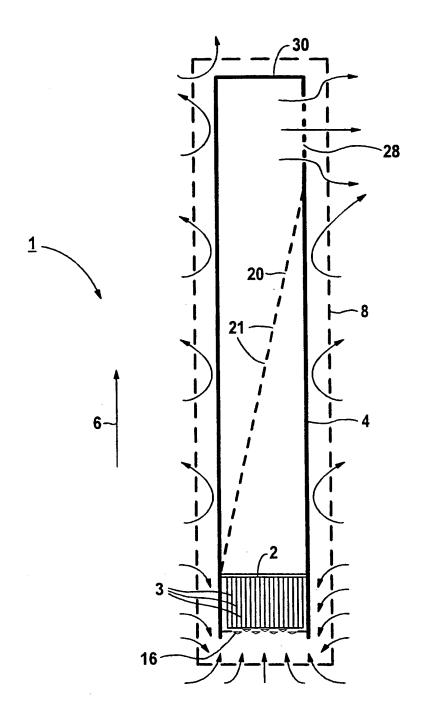
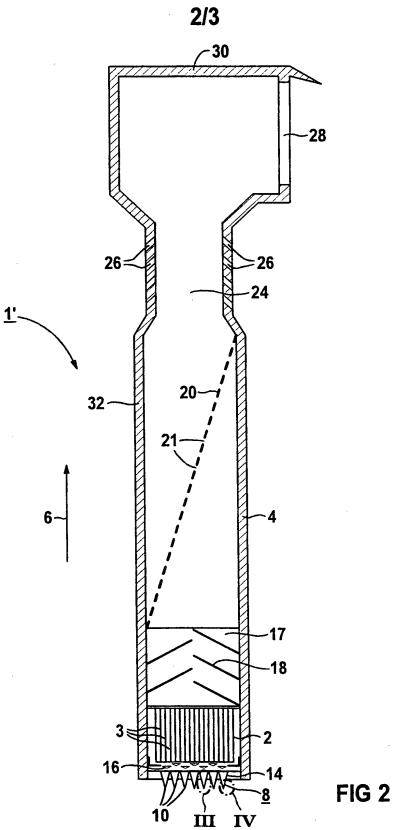


FIG 1



3/3

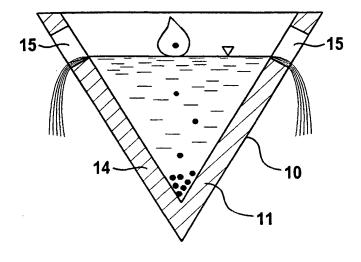
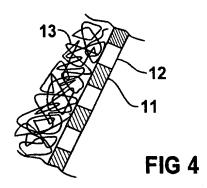


FIG 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

national Application No PCT/EP 98/00430

			C1/E1 90/00430
A. CLASS IPC 6	GET GET STATE GET STATE GET GET GET GET GET GET GET GET GET G		
According t	to International Patent Classification(IPC) or to both national classifi	ication and IPC	
B. FIELDS	S SEARCHED		
Minimum ad IPC 6	documentation searched (classification system followed by classification ${\sf G21C}$	tion symbols)	
	ation searched other than minimumdocumentation to the extent that		
Electronic o	data base consulted during the international search (name of data b	ase and, where practical, sea	rch terms used)
C. DOCUM	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category ·	Citation of document, with indication, where appropriate, of the re	levant passages	Relevant to claim No.
х	US 5 301 217 A (HECK ET AL.) 5 A	pril 1994	1-6,10, 11,16-21
	see the whole document		,
Х	US 4 911 879 A (HECK ET AL.) 27	March 1990	1-6,10, 11,16,
	see the whole document		20,21
Х	DE 44 28 956 C (FORSCHUNGSZENTRU GMBH) 22 August 1996 see the whole document	M JÜLICH	1-6,11, 13-16
Α	US 5 230 859 A (WIESEMES) 27 Jul	y 1993	1,2,6-8, 11,12,16
	see column 2, line 20-25 see column 3, line 12-37 see column 4, line 15-28		
		-/	
X Furth	ther documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family memb	pers are listed in annex.
³ Special ca	ategories of cited documents :	"T" loter decument numicha	To the international filing date
consia	ent defining the general state of the art which is not dered to be of particular relevance document but published on or after the international date	or priority date and not cited to understand the invention "X" document of particular re	d after the international filing date in conflict with the application but principle or theory underlying the elevance; the claimed invention
"L" docume which citation	ent which may throw doubts on priority claim(s) or is cited to establish the publicationdate of another in or other special reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or	cannot be considered r involve an inventive ste "Y" document of particular re cannot be considered to	novel or cannot be considered to p when the document is taken alone elevance; the claimed invention o involve an inventive step when the
otner n "P" docume	ent reterring to an oral disclosure, use, exhibition or means ent published prior to the international filing date but han the priority date claimed		with one or more other such docu- on being obvious to a person skilled e same patent family
Date of the a	actual completion of theinternational search		ternational search report
18	8 May 1998	18/06/1998	3
Name and m	mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk	Authorized officer	
	Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016	Frisch, K	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

I. national Application No
PCT/EP 98/00430

	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category	Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
4	US 4 228 132 A (WEEMS ET AL.) 14 October 1980 see the whole document	1,7,11, 13-15
\	US 5 321 730 A (ECKARDT) 14 June 1994 see the whole document	
;		
:		

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

PCT/EP 98/00430

			,
Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5301217 A	05-04-94	DE 4015228 A CA 2082627 A CS 9101349 A WO 9118398 A DE 59106095 D EP 0527968 A ES 2075476 T FI 924624 A RU 2069582 C US 5473646 A	14-11-91 12-11-91 15-01-92 28-11-91 31-08-95 24-02-93 01-10-95 13-10-92 27-11-96 05-12-95
US 4911879 A	27-03-90	DE 3727207 A DE 3816012 A DE 3872095 A DE 8809641 U EP 0303144 A FI 883071 A,B JP 1068697 A CA 1310768 A SU 1681722 A	23-02-89 16-11-89 23-07-92 13-10-88 15-02-89 15-02-89 14-03-89 24-11-92 30-09-91
DE 4428956 C	22-08-96	NONE	
US 5230859 A	27-07-93	DE 3820187 A DE 3823421 A DE 3833401 A DE 3901382 A WO 8912897 A EP 0437436 A JP 3505080 T	02-02-89 18-01-90 23-03-89 26-07-90 28-12-89 24-07-91 07-11-91
US 4228132 A	14-10-80	US 4139603 A	13-02-79
US 5321730 A	14-06-94	DE 4040734 A WO 9120086 A DE 59106383 D	02-01-92 26-12-91 05-10-95

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

, arnationales Aktenzeichen PCT/EP 98/00430

		1	• • • • • •
A. KLASS IPK 6	SIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES G21C19/317		
Nach der l	internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klas	ssifikation und derIPK	
	ERCHIERTE GEBIETE		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
Recherchi IPK 6	ierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbo G21C	le)	
Recherchi	ierte aber nicht zum Mindestprufstoffgenörende Veröffentlichungen. so	weit diese unter die recherchierten Gebiete	fallen
Während	der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (N	lame der Datenbank und evtl. verwendete	Suchbegriffe)
C. ALS W	VESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabi	e der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Х	US 5 301 217 A (HECK ET AL.) 5.Ap	oril 1994	1-6,10, 11,16-21
	siehe das ganze Dokument		
X	US 4 911 879 A (HECK ET AL.) 27.M	März 1990	1-6,10, 11,16,
	siehe das ganze Dokument 		20,21
X	DE 44 28 956 C (FORSCHUNGSZENTRUN GMBH) 22.August 1996 siehe das ganze Dokument	1 JÜLICH	1-6,11, 13-16
Α	US 5 230 859 A (WIESEMES) 27.Juli	1993	1,2,6-8, 11,12,16
	siehe Spalte 2, Zeile 20-25 siehe Spalte 3, Zeile 12-37 siehe Spalte 4, Zeile 15-28		
	-	-/	
	eitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu tnehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie	1
'Besonde 'A" Veröff aber "E" ältere Anm "L" Veröff sche ande soll o ausg "O" Veröf dem	ere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen fentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist is Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen ieldedatum veröffentlicht worden ist fentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- einen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer eren im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie geführt) fentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht fentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach den oder dem Prioritätsdatum veröffentlich Anmeldung nicht kollidiert, sondern nu Erfindung zugrundeliegenden Prinzips Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bede kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung von besonderer Bede kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betr "Y" Veröffentlichung von besonderer Bede kann nicht als auf erfinderischer Tätigl werden, wenn die Veröffentlichung mi Veröffentlichung nie veröffentlichung diese Verbindung für einen Fachmanr "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselbei Absendedatum des internationalen Re	It worden ist und mit der ir zum Verständnis des der is oder der ihr zugrundeliegenden utung; die beanspruchte Erfindung ichtig nicht als neu oder auf achtet werden utung; die beanspruchte Erfindung keit berühend betrachtet teiner oder mehreren anderen i Verbindung gebracht wird und in aheliegend ist
	18.Mai 1998	18/06/1998	
Name und	d Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bediensteter	
	Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Frisch, K	

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

i. .nationales Aktenzeichen
PCT/EP 98/00430

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Kategone Bezeichnung der Veröffentlichung, sowsit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch A US 4 228 132 A (WEEMS ET AL.) 14.0ktober 1.7, 1980 siehe das ganze Dokument A US 5 321 730 A (ECKARDT) 14.Juni 1994 siehe das ganze Dokument	
A US 4 228 132 A (WEEMS ET AL.) 14.0ktober 1.7, 1980 13-19 Siehe das ganze Dokument A US 5 321 730 A (ECKARDT) 14.Juni 1994	
1980 siehe das ganze Dokument ————————————————————————————————————	Nr.
A US 5 321 730 A (ECKARDT) 14. Juni 1994 siehe das ganze Dokument	11,

1

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (das: 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur seiben Patentfamilie gehören

PCT/EP 98/00430

Im Recherchenbericht ngeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5301217 A	05-04-94	DE 4015228 A CA 2082627 A CS 9101349 A WO 9118398 A DE 59106095 D EP 0527968 A ES 2075476 T FI 924624 A RU 2069582 C US 5473646 A	14-11-91 12-11-91 15-01-92 28-11-91 31-08-95 24-02-93 01-10-95 13-10-92 27-11-96 05-12-95
US 4911879 A	27-03-90	DE 3727207 A DE 3816012 A DE 3872095 A DE 8809641 U EP 0303144 A FI 883071 A,B JP 1068697 A CA 1310768 A SU 1681722 A	23-02-89 16-11-89 23-07-92 13-10-88 15-02-89 15-02-89 14-03-89 24-11-92 30-09-91
DE 4428956 C	22-08-96	KEINE	
US 5230859 A	27-07-93	DE 3820187 A DE 3823421 A DE 3833401 A DE 3901382 A WO 8912897 A EP 0437436 A JP 3505080 T	02-02-89 18-01-90 23-03-89 26-07-90 28-12-89 24-07-91 07-11-91
US 4228132 A	14-10-80	US 4139603 A	13-02-79
US 5321730 A	14-06-94	DE 4040734 A WO 9120086 A DE 59106383 D EP 0535025 A	02-01-92 26-12-91 05-10-95 07-04-93